

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-212700

(43)Date of publication of application : 30.07.2003

(51)Int.Cl.

C30B 29/54

C30B 7/00

C30B 29/06

(21)Application number : 2002-012871

(71)Applicant : NATIONAL INSTITUTE FOR
MATERIALS SCIENCE

(22)Date of filing : 22.01.2002

(72)Inventor : SAWADA TSUTOMU

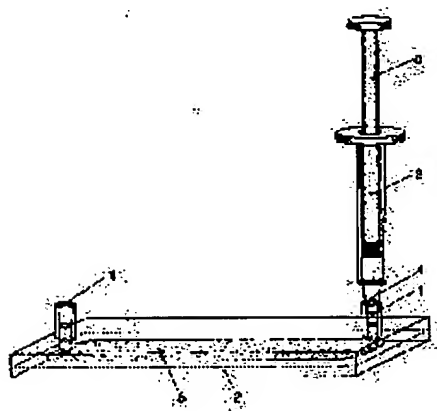
**(54) VESSEL FOR PRODUCING COLLOIDAL SINGLE CRYSTAL, METHOD FOR
TURNING COLLOIDAL CRYSTAL INTO SINGLE CRYSTAL BY USING THE SAME,
AND METHOD FOR PRODUCING DRIED COLLOIDAL CRYSTAL**

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a means for producing a colloidal single crystal, by which mixing of air bubbles into a vessel when a colloidal solution is injected can be prevented, the formed colloidal single crystal is prevented from being disordered when a liquid injector is taken out after forming the single crystal and further the formed single crystal can be uniformly dried when the colloidal single crystal is produced by allowing the colloidal solution to flow in a uniaxial direction and imparting shear flow to the colloidal solution in a vessel having a flat plate-shaped capillary.

SOLUTION: In the vessel 2 for producing the colloidal single crystal, which has liquid injection ports 1 provided at the both ends of the vessel in a protruding condition and the flat plate-shaped capillary 5 having a gap of ≈ 0.5 mm, the structure of each liquid injection port 1 is set to have a taper in such a manner that the opening part of the entrance side is wider and the opening part of the back side is narrower. The vessel is made of a transparent

plastic having a certain moisture permeability, and a colloidal solution using water as a dispersion medium is used as the colloidal solution.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

30.08.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

*** NOTICES ***

JPO and NCIPF are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The quality of the material of a container is a colloid single crystal production container with which it is characterized by the capillary tube field at least being constituted by the transparent material while it is the colloid single crystal production container which has the plate-like capillary tube which has pouring-in opening prepared in container both ends by protruding, and has the gap of 0.5mm or less succeeding this pouring-in opening, and is [structure / of this pouring-in opening] large in entrance-side opening, and attaching a taper and setting up the back narrowly.

[Claim 2] The colloid single crystal production container according to claim 1 with which a container according to claim 1 is characterized by being glass.

[Claim 3] The colloid single crystal production container with which a container according to claim 1 is characterized by being a product made from plastics.

[Claim 4] The production approach of the colloid single crystal characterized by single-crystal-izing a colloid crystal by pressing the colloidal solution fit in a colloid single crystal production container according to claim 1, 2, or 3, and giving a shear flow to this colloidal solution.

[Claim 5] The production approach of the desiccation colloid crystal characterized by pressing the colloidal solution fit in a colloid single crystal production container according to claim 1 or 2, single-crystal-izing a colloid crystal by giving a shear flow to this colloidal solution, and

subsequently to a desiccation process giving.

[Claim 6] The production approach of the desiccation colloid crystal characterized by pressing the colloidal solution fit in a colloid single crystal production container according to claim 3, single-crystal-izing a colloid crystal by giving a shear flow to this colloidal solution, emitting moisture slowly by the slight moisture permeability which the plastics quality of the material subsequently has, and obtaining a desiccation crystal by this.

[Claim 7] The production approach of the desiccation colloid crystal characterized by drying a colloid single crystal by slow emission of the moisture which used the slight moisture permeability of the plastics material after forming in a colloid single crystal the colloidal solution which makes water a dispersion medium by giving a shear flow in the plate-like capillary tube container of the plastics quality of the material.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the single crystal-ized approach of the colloid crystal which manufactures a colloid single crystal using the colloid single crystal production container and this container for saving the crystal which produced the colloid single crystal which can serve as an optical element ingredient, and was produced, and the production approach of a desiccation colloid crystal.

[0002]

[Description of the Prior Art] In the colloidal solution which distributed particles, such as macromolecule RATTEKUSU and a silica, to liquid media, such as water and an organic solvent, the structure which the particle arranged regularly in three dimensions is spontaneously formed in the bottom of a suitable condition, and the colloidal solution in such a condition is called the colloid crystal (bibliography: edited by Chemical Society of Japan "the colloid science I" 119 pages), and attracts attention from the use as an optical material.

[0003] Usually, it succeeded in making the huge single crystal domain which attains to cm size in a plate-like capillary tube by giving a shear flow to the colloidal solution in this invention person etc. although obtained in the state of the polycrystal with which, as for the colloid crystal, with a size of several mm or less crystal domains gathered form, and patent application was previously carried out based on this (application for patent No. 217660 [2000 to]).

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] An old technique, i.e., the outline of the above-mentioned prior invention As shown in drawing 1, cylindrical pouring-in opening for pouring in the colloidal solution protrudes on a container outer wall, and is prepared in container both ends. In and the colloid single crystal production container with which the capillary tube space which was connected [opening / this / cylindrical pouring-in] and presented the narrow plate-like gap is prepared The colloidal solution which is in a colloid crystallized state from pouring-in opening of the end is poured in. Fill the inside of a container with the colloidal solution, and, subsequently to the colloidal solution, a shear flow is given. Then, after making 1 shaft orientations flow in parallel with a substrate side in the capillary tube space which presented the plate-like gap, it was the thing in which the colloid single crystal which is a colloid crystal which

has the organization which was made to stand it still and was excellent in three-dimensions-homogeneity is made to form. From the clysis of the colloidal solution in the meantime, a series of actuation of resulting in grant of a shear flow, and a flow of 1 shaft orientations The colloidal solution is filled to the syringe (syringe) which the needle attached. First, a needle Insert in cylindrical pouring-in opening and the colloidal solution is poured in from pouring-in opening by piston actuation of a syringe. After the completion of pouring-in actuation, the empty syringe which does not attach a needle was sealed to pouring-in opening by minding a tube, it attached (drawing 1), and the pressure for a shear flow was put on the colloidal solution in a container, i.e., the sample solution in a capillary tube.

[0005] However, this approach had a problem in that air bubbles tend to mix the sample colloidal solution in a capillary tube in the process poured in a container so that it might mention later. Removing was difficult for the air bubbles once mixed in the capillary tube, and it had become a failure in the single crystal-ized processing by flow following this actuation. (Technical problem 1)

[0006] Moreover, although this syringe is sampled from pouring-in opening after completing a series of syringe actuation of obtaining a crystal If the tip of a syringe is connected to pouring-in opening through the tube by the old approach as described above (drawing 1), and it is going to remove a syringe the whole tube from a tube after process actuation of obtaining a single crystal Pressure fluctuation started the capillary tube section and there was un-arranging [of disturbing the condition of the once single-crystal-ized sample]. (Technical problem 2)

[0007] Moreover, in order to obtain the desiccation colloid crystal of the good big domain of single crystal nature, it is necessary to make homogeneity dry this on the whole very slowly after forming a single crystal by giving a shear flow in a plate-like capillary tube. It is expected that a desiccation colloid crystal is connected with the application development as a bigger optical element ingredient excellent in functionality than that [photograph nick band gap (bibliography: work / besides J.D.Joannopoulos /, Fujii and Inoue translation "photograph nick crystal" Corona Publishing)] since the difference of the refractive index of a particle and the other part is large as compared with the colloid crystal with which the solvent exists.

[0008] However, although the desiccation process after forming a single crystal and sampling a syringe subsequently was performed in the old approach, i.e., the approach of the above-mentioned prior invention, by the mode dried by opening wide pouring-in opening prepared in both ends, and evaporating a solvent from there It was very difficult not to obtain a colander by this desiccation approach, if it is in the place near an open end, and the direction of the back more distant than this at an ununiformity, but to obtain the high desiccation colloid crystal of single crystal nature based on a uniform rate of drying. (Technical problem 3)

[0009] Also in the process which pours the colloidal solution in a container in order that this invention may obtain a colloid single crystal Air bubbles do not mix in a capillary tube, and it also sets to the pouring-in machine sampling actuation after single crystal formation. the thing that the colloid single crystal production container which does not make a capillary tube produce pressure fluctuation will be offered -- it is -- moreover, use of this container -- forecited -- the production approach of the colloid single crystal which inconvenient **** does not produce, or a desiccation colloid crystal will be offered

[0010] The approach of offering the colloid single crystal production container which can also realize homogeneity desiccation of a colloid crystal by setting up said container with the specific quality of the material in addition to solution of many of said problems, or obtaining the high desiccation colloid crystal of single crystal nature by homogeneity desiccation by this means will

be offered further again.

[0011]

[The means for carrying out technical-problem solution] As a result of inquiring wholeheartedly in this invention person, the cause which the (i) air bubbles produce Depending on the clysis through the needle of a syringe, the tip interface of the liquid in a narrow capillary tube That it is what does not necessarily advance uniformly, but slowness and fastness produce according to resistance, a wettability difference, etc. of a capillary tube, and the contamination phenomenon of air bubbles produces by this, and these phenomena That the force at the time of in short pouring in is equal into a liquid, and that it is the phenomenon which results from fully not acting and (ii) pressure fluctuation The force applied when sampling a syringe acted on the colloidal solution by which it was single-crystal--ization-processed in the capillary tube, and it traced that it was the phenomenon produced as a result of this serving as pressure fluctuation and influencing.

[0012] and in order to make it not produce these phenomena In case the colloidal solution is poured in, it is made for the force to act on a liquid certainly by pressing the colloidal solution fit rather. In the case of syringe sampling after single crystal formation The result of having advanced research to the pan wholeheartedly per [which satisfies this requirement] means since it was required to make it the force not act, As the structure of pouring-in opening was shown in drawing 3 which expanded the installation relation between drawing 2 or its pouring-in opening, and the tip of a pouring-in means as an entry of a pouring-in means point, it applied to the back from the inlet port, and it was large in the inlet port and found out that it could solve by attaching a taper and setting up the back narrowly.

[0013] Namely, it is not necessary to use the pouring-in machine which attached the needle at the tip by making pouring-in opening into the structure which attached the taper. Moreover, only by inserting in pouring-in opening a part for the syringe point which attaches a needle, if it is not necessary to use a tube namely, and a pouring-in machine is described based on a syringe, in order to secure adhesion The force which can stick certainly to a container, consequently is pressed fit can be certainly acted on a liquid, and the force does not act on the single crystal formed in the capillary tube only by depending only on the only sampled actuation from a taper on the contrary in the case of sampling.

[0014] Even if it is the thing of the structure which only presented the shape of a cylinder like old and is going to carry this out, the relation between a pouring-in machine tip and pouring-in opening Except when it is formed so that both may be dimensionally in agreement, and it enables it to maintain adhesion relation by this Trouble will be caused to press fit actuation even if it uses that from which adhesion cannot be collateralized, namely, a dimension differs. Or make both dimensionally in agreement and set them up, and when being formed so that adhesion can be held, it sets. As a result of requiring the force impossible in the case of sampling and this force's acting on a crystal, the crystal which consists of a colloidal particle which aligned will be disturbed, and it will have a bad influence.

[0015] This invention can attain an expected aim, without performing both wearing and desorption smoothly and producing before **** convenience by constituting the structure of pouring-in opening in a taper configuration at least.

[0016] In addition, in the prior invention which makes this invention the premise technique, pouring-in actuation and a series of the actuation of all that gives a shear flow use a syringe chiefly, is performed by piston actuation of a syringe, and pouring-in actuation through a needle is carried out by between them. Therefore, although the pouring-in means is chiefly expressed

based on the syringe in case it states in relation to an old technique The aim of this invention is a passage on **, and the other pouring-in means can also be used from the structure of pouring-in opening indicated as a means for it as well as the ability to use like old the syringe in the condition of having extracted the needle, to pour in with a needle being used as unnecessary through these all actuation periods.

[0017] Namely, the meaning of a point which set the structure of pouring-in opening as the structure which attached the taper It is what means using the thing of the structure corresponding to this pouring-in opening also about the pouring-in means concerned as a matter of fact. This can be used for liquid pressure acquisition stages, such as that in which the syringe of the structure which extracted the needle as shown in drawing 2 , of course, has not only this but the same structure, for example, the syringe by which the tip is presenting the taper in the shape of a taper, and a pipet. However, probably, about the syringe which comes to equip a needle, being eliminated will be clear also from the explanation on **.

[0018] It compares with the conventional technique in which cylindrical shape pouring-in opening was only performing pouring-in actuation, through the needle at the tip of a syringe. Anyway, this invention There is also no contamination of air bubbles only by the actuation which only inserts in pouring-in opening the pouring-in machine which has the structure corresponding to this by lecturing on the configuration on **. Moreover, it is not necessary to use a troublesome tube for handling, and the colloidal solution is pressed fit in a container as it is. A shear flow can be given to the colloidal solution and a single crystal can be formed. The sampling of the pouring-in machine after colloid single crystal formation only again by the actuation point of only sampling Force which disturbs this to the generated colloid single crystal seems to be able to **** easily and not to act, without requiring the force.

[0019] Moreover, as a result of also examining wholeheartedly a means dry to homogeneity the colloid crystal containing the dispersion medium confined by the container (iii), it finds out that it can solve by using the colloidal solution which makes water a dispersion medium as raw material liquid of a colloid crystal, and using the thing which comes to carry out a manufacture configuration by the plastics which has fixed moisture permeability as a container for crystal preservation on the other hand.

[0020] By the approach indicated by the old prior invention, desiccation It is carried out through the pouring-in opening open end which is only a part when it sees from the colloid crystal held in the whole container. Since it is carried out by being extremely unevenly distributed in a part, in order to become heterogeneity and to solve this By selecting the quality of the material of a container based on a specific property, and choosing and combining the colloidal solution by the specific dispersion medium with this, as a result of taking lessons from the means which fulfills this condition the place which needs to be dried on the whole and inquiring wholeheartedly It finds out that the whole colloid crystal may be dried to homogeneity.

[0021] Namely, by selecting and using plastics with fixed moisture permeability for a container, and combining the colloidal solution which made water the dispersion medium at this The moisture of a dispersion medium is made to emit through the whole wallplate of a container from the obtained crystal, and it compares with the conventional technique by the local evaporation region which was unevenly distributed in pouring-in opening with this, and if it puts in another way with the same rate of drying mostly over the whole container surface, on the whole, it can dry to homogeneity.

[0022] As stated above the 1st solution means of this invention (1) It is the colloid single crystal production container which has the plate-like capillary tube which has pouring-in opening

prepared by protruding to container both ends, is connected [both ends] at this pouring-in opening, and has the gap of 0.5mm or less. While the structure of this pouring-in opening is applied to the back from an inlet port, and it is large in an inlet port, and attaching a taper and setting up the back narrowly, the quality of the material of a container is having considered as the colloid single crystal production container characterized by the capillary tube field being constituted by the transparent material at least.

[0023] the 2nd solution means of this invention -- (2) -- the container shown in said 1st solution means is having considered as the colloid single crystal production container characterized by being glass.

[0024] the 3rd solution means of this invention -- (3) -- the container shown in said 1st solution means is having considered as the colloid single crystal production container characterized by being a product made from plastics.

[0025] the 4th solution means of this invention -- (4) -- it is the single crystal-ized approach of the colloid crystal characterized by forming a colloid single crystal by pressing the colloidal solution fit in said solution means 1 and 2 or the colloid single crystal production container of three publications, and giving a shear flow to this colloidal solution.

[0026] the 5th solution means of this invention -- (5) -- it is the production approach of the desiccation colloid crystal characterized by pressing the colloidal solution fit in said solution means 1 or the colloid single crystal production container of two publications, forming a colloid single crystal by giving a shear flow to this colloidal solution, and subsequently to a desiccation process giving.

[0027] the 6th solution means of this invention -- (6) -- it is the production approach of the desiccation colloid crystal characterized by to press the colloidal solution fit in the colloid single crystal production container of said solution means 3 publication, to form a colloid single crystal by giving a shear flow to this colloidal solution, to emit moisture slowly by the slight moisture permeability which the plastics quality of the material subsequently has, and to obtain a desiccation crystal by this.

[0028] Without setting obtaining (7) desiccation colloid crystal and being based especially on specific structure, the 7th solution means of this invention produces a colloid crystal in the container of the product made from plastics which has fixed moisture permeability, and is characterized by drying a colloid crystal by slow emission of the moisture using the slight moisture permeability which this container has.

[0029] The point used as the colloid single crystal production container which have the plate-like capillary tube which have pouring - in opening prepared by protruding, the matters, i.e., the container both ends, of the preceding paragraph, be connected [both ends] in the 1st solution means at this pouring - in opening, and have the gap of 0.5mm or less here have pointed out the technical matter which be common in the prior invention made into an old technique, i.e., the premise technique of this invention. It specifies from the shearing force in a flow becoming weak if a gap becomes larger [the reason for having poured in the colloidal solution with which this invention takes a colloid crystallized state in the narrow plate-like capillary tube, having filled, giving a shear flow subsequently to the colloidal solution, having arranged the array direction of a colloidal particle by this, forming a colloid single crystal, and having made 0.5mm into the upper limit for a setup of the gap] than this, and formation of a colloid single crystal becoming difficult.

[0030] The point which it was [matter / , i.e., the structure of pouring-in opening, / latter] large in opening of an entrance side, was narrow in the back side, attached the taper, and was set up

The pouring-in machine which pours the colloidal solution in a container and gives a shear flow by this Pouring-in means, such as not only the syringe in the condition of having taken the needle so that it might be shown in a pouring-in means, for example, drawing 2 , to have the taper configuration of the shape of a taper corresponding to the configuration of this pouring-in opening but a syringe, a pipet, a micropipette, etc., can be used. By this Can stick a pouring-in machine and a container, and the colloidal solution is pressed fit in a capillary tube at high speed, without involving in air bubbles. Since can give a shear flow to the colloidal solution, a single crystal can be formed, and the contamination of the air bubbles resulting from the syringe actuation which the conventional needle attached can be prevented and it is operated through a tube The operation effectiveness which was [sample / it / easily] excellent is done so, without having a bad influence, like the sampling of the pouring-in machine after single crystal formation also disturbs a colloid single crystal.

[0031] In addition, it sets to pour in a liquid by syringe actuation which the needle attached to the capillary tube of a plate-like narrow gap about the cause which air bubbles mix. Since this pouring-in opening is wide opened towards outside even if it is going to insert the needle at the tip of a means slack syringe for pouring in in pouring-in opening and is going to pour in a liquid, It will be in the condition that a pressure cannot be easily applied to the liquid which flows into the capillary tube from a needle, and the inflow rate of a liquid will become slow for the fluid resistance of a capillary tube. or [that how depending on which a liquid and a container wall are damp is a delicate difference by the location of the cleanliness of a container wall, and the core of a capillary tube on the other hand] -- an edge -- ** -- since it differs depending on the difference in the said local configuration, the configuration of the oil level of the front line of the liquid which flows in the capillary tube is in the inclination which curves reflecting the difference in such how to get wet. if the inflow rate of a liquid is slow -- the curve of the oil level of the front line -- developing -- just -- being alike -- a result which wins air bubbles is brought.

[0032] the slow pouring-in voice according [in the old technique which it is making into the premise of this invention, as shown in drawing 1 , actually insert the needle of a syringe in pouring-in opening formed in the shape of a cylinder, and] to a needle -- since it was what is depended like, the situation which the contamination phenomenon of forecited air bubbles tends to produce, consequently air bubbles tend to mix was suited. That is, it was what cannot be denied that there was a cause of an end also in the pouring-in system of a container. However, if according to the container of this invention which makes pouring-in opening the structure which attached the taper pouring-in opening is the container which is presenting the taper configuration as shown in drawing 2 and drawing 3 , since between a container and pouring-in machines can be stuck by the taper section 7, It becomes possible to pour a sample solution object into a high speed compulsorily with the press fit means (piston) of a pouring-in machine, and mixing of the air bubbles in the oil level of the front line of the liquid which flows in the capillary tube can be prevented.

[0033] And since it has contacted in the taper configuration at this time, and a pouring-in machine is only sampled to hard flow with the direction of a push in and the adhesion relation between a pouring-in machine tip and pouring-in opening can be easily canceled although a pouring-in machine tip is demounted from pouring-in opening if the single crystal-ized actuation which follows pouring-in actuation finishes, a pouring-in machine can be removed easily. On the other hand, in the premise technique in which the taper is not attached, since it connected through the tube as shown in drawing 1 , if it is going to remove a syringe from a tube, or when it was going to remove the whole tube, pressure fluctuation might start the capillary tube section,

and the condition of the once single-crystal-ized sample might be disturbed. That is, in case it removes, only by some force being added, this serves as pressure fluctuation and gets across to a capillary tube, but since, as for this invention, the taper is attached, the removal does not give pressure fluctuation to a capillary tube only by sampling.

[0034] In addition, since the air bubbles mixed once are impossible for removing this as a matter of fact, when air bubbles once mix, product value will be lost and cannot but carry out disposal with an expensive container. This invention, i.e., by adopting the easy means which makes structure of pouring-in opening taper structure, the point that generating of air bubbles can be suppressed now has a very big meaning.

[0035] The point which made the ingredient of a container the transparent material in the solution means of (1), (2), and (3) and the point used as glass, or the point made into plastics That it is necessary to conduct optical inspection of the quality of the colloid single crystal formed in the interior of a container and, and a colloid crystal By closing held in the manufactured container, the embodiment which is going to component-ize and it is going to use as a colloid crystal component the whole container also needs to be made by the transparent material, and a certain thing to a container is a configuration for it. And glass and plastics are indicating the concrete material selection for it.

[0036] Next, (4) or (5) solution means indicates the approach of single-crystal-izing a colloid crystal using said solution means 1 and 2 or the colloid single crystal production container of three publications, and the approach of producing a desiccation colloid crystal further. That is, the colloidal solution is pressed fit in a forecited colloid single crystal production container, in a container, a shear flow is given to this colloidal solution, a single crystal is formed by this, and a desiccation colloid crystal is produced by adding a desiccation process further. The desiccation approach in this case is performed by the same approach as the prior invention made into a premise technique by this invention. That is, pouring-in opening prepared in container both ends by protruding is opened wide, and it is carried out by evaporating a dispersion medium over many hours slowly from here.

[0037] The solution means of a publication indicates the approach of producing a desiccation colloid crystal with a characteristic desiccation means to (6) and (7). this -- the former -- this -- the homogeneity desiccation which could not be attained depending on the desiccation means by the characteristic desiccation means is attained, and the high desiccation colloid crystal of single crystal nature can be obtained. In this approach, the place made into the requirements matter for it While the colloidal solution to be used chooses the colloidal solution which makes water a dispersion medium It is what chooses that by which the crystal production container to be used was also produced with the plastics which has fixed moisture vapor transmission. By this the desiccation process after forming a single crystal It dries by emitting moisture slowly from the whole container by the slight moisture permeability which the plastics quality of the material has chiefly, and the high desiccation colloid crystal of single crystal nature is obtained by this.

[0038]

[The gestalt and example] of operation of this invention The basic configuration of the colloid single crystal production container of this invention and the single crystal-ized approach of the colloid crystal which used this container are explained based on drawing 2 . In drawing 2 , 2 is a colloid single crystal production container which has a plate-like capillary tube. The container is made of the transparent ingredient in hard. For example, plastics, such as quartz glass, various optical glass, a polycarbonate, and an acrylic, is mentioned. The plate-like capillary tube 5 is formed by having set the interior of a container as the gap of 0.5mm or less. The pouring-in

opening 1 is protruded and formed in the both ends of a container, and pouring-in opening of the end continues from the internal plate-like capillary tube 5 to pouring-in opening of the other end further. 3 is a pouring-in machine and 4 is a pouring-in machine point.

[0039] As shown in an enlarged drawing 3, the pouring-in opening 1 is large in opening of an entrance side, narrowly, it attaches the back and the taper is set up in it. Only by actuation which inserts the tip of a pouring-in machine with this taper, the point of a pouring-in machine can stick and contact pouring-in opening, and can also perform removal easily. In addition, this taper configuration does not need to be [that what is necessary is just to adopt the thing of the format corresponding to the hypodermic needle attachment part 4 of the commercial standard pouring-in machine 3, i.e., a lure syringe,] special especially.

[0040] Although the function for which a pouring-in machine is asked presses the colloidal solution fit in a container, or a shear flow is given to the colloidal solution, performing pressure operated of making 1 shaft orientations flow along plate-like capillary tube space etc. is called for and a syringe is mentioned most typically, if the above-mentioned actuation is possible, it is as having mentioned above that not only a syringe but a syringe, a pipet, etc. can be used.

[0041] In addition, as shown in drawing 1 in the case of the prior invention made into the premise technique of this invention, the syringe which the needle attached was inserted into cylindrical shape-like pouring-in opening, the colloid crystal solution was injected into it, but to the sample solution which flows into the capillary tube in this case, a pressure is hard to be applied, and since it is the fluid resistance of a capillary tube, the inflow rate of a liquid becomes slow. a delicate difference, and the core or edge of a capillary tube according [how depending on which a liquid and a container wall are damp on the other hand] to the location of the cleanliness of a container wall -- ** -- since it differs depending on the difference in the said local configuration, the configuration of the oil level of the front line of the liquid which flows in the capillary tube is in the inclination which curves reflecting the difference in such how to get wet. if the inflow rate of a liquid is slow -- the curve of the oil level of the front line -- developing -- just -- being alike -- a result which wins air bubbles is brought. The probability for air bubbles to actually mix by the impregnation approach to which the taper is not given was high.

[0042] However, since a taper part sticks by the way and it can contact when pouring-in opening considered as the container which has taken the taper configuration as mentioned above Since it can seal certainly between a container and a pouring-in machine, it can pour a sample solution object into a high speed compulsorily by pushing of the piston of a pouring-in machine. Before the phenomenon in which the configuration of the oil level of the front line of the colloidal solution which flows in the capillary tube curves appears, it can complete pouring in quickly, and mixing of air bubbles is prevented.

[0043] Here, a colloidal particle begins organic giant-molecule particles, such as polystyrene and polymethylmethacrylate, here, and the oxide particle of various metals, such as metal particles, such as a silica particle, gold, and silver, titanium, and iron, etc. is mentioned further. As a dispersion medium, organic solvents including water, such as various alcohol and benzene, etc. are mentioned.

[0044] The colloidal solution which takes a colloid crystallized state in a pouring-in vessel first is extracted, it inserts until it sticks a pouring-in machine tip to pouring-in opening, and the colloidal solution is pressed fit in a container. The solution pressed fit passes through the passage crooked from pouring-in opening which protruded, is injected into a plate-like capillary tube, and is filled with a solution even to pouring-in opening of the other end. By the above actuation, after

pressing the colloidal solution 6 fit in a container, the colloidal solution is single-crystal-ized by giving a shear flow to the colloid crystal in a capillary tube by carrying out push length of the piston of a pouring-in machine. Since it has joined together in the taper configuration at this time and the adhesion condition of a pouring-in machine tip and pouring-in opening is easily cancelable although a pouring-in machine tip is removed from a container if needed if this actuation finishes, it can remove without hardly giving pressure fluctuation to the interior of a capillary tube.

[0045] Although possibility that pressure fluctuation will disturb the crystalline structure of propagation and the sample single-crystal-ized with much trouble inside a capillary tube at the process drawn out from a tube was high when removing a pouring-in machine, i.e., a syringe, since a syringe tip and pouring-in opening which protruded on the container were combined and sealed by the tube when it was the former (drawing 1), this un-arranging was cancelable with the above-mentioned means.

[0046] After a colloid single crystal is formed, by closing both the pouring-in opening, it is component-ized and considers as a colloid crystal component the whole container. Or when it is going to obtain a desiccation colloid crystal, a desiccation crystal is obtained by opening pouring-in opening wide and evaporating a dispersion medium slowly.

[0047] Although the above explained how to produce a desiccation crystal in a colloid single crystal list using the colloid single crystal production container of this invention By using the container made in the quality of the material of a container by plastics, such as a polycarbonate, an acrylic, etc. which have fixed moisture permeability, and using the colloidal solution which uses water as a liquid medium as the colloidal solution How to lead the plastics which constitutes the container wallplate, to evaporate, and to dry water through a container, with to obtain a desiccation colloid crystal is explained.

[0048] As for the amount the property which penetrates the moisture of plastics indicates "moisture permeability" and its value to be, "moisture vapor transmission" is usually used. Moisture vapor transmission is specified here at JIS (JIS Z 0208), and the numeric value which expresses moisture vapor transmission in this invention has pointed out the numeric value based on this convention. Moisture vapor transmission of the plastics when setting thickness to 1mm (a unit) the environment of g/m² and 24Hr, 40 degrees C, 90%RH, i.e., 40 degrees C, and 90% of relative humidity -- area 1m² It is expressed with the value which shows the moisture weight which penetrates plastics over 24 hours. When indicated concretely, polycarbonates were about 4, the polystyrene about 3 polypropylene about 0.3, high density polyethylene 0.13, and Appel's (plastics of Mitsui Chemicals, Inc.; trade name) 0.09 order.

[0049] If this invention person makes the trial calculation of the drying time of a colloid crystal based on the above-mentioned moisture vapor transmission about colloidal-solution weight 100g/m² to 500 per unit areag / 2 (10cm²) and m²(actual amount of solutions in container is 0.1g to 0.5g)] the polycarbonate container [thickness of 1mm actually used in the experiment, and the surface area of about 0.001m, in a count top, the time amount which desiccation takes will become 125 days from the 25th. When this was contrasted with the actual desiccation experiment, in the desiccation experiment, although a desiccation colloid crystal is obtained, several months were required from the tenth, and there is no difference like ** and it was mostly in agreement with the count top and the actual experimental result.

[0050] For the quality of the material of the container for colloid crystal formation suitable for manufacturing a desiccation colloid crystal from the experiment shown above or various data, the moisture vapor transmission at the time of setting thickness to 1mm is from 0.3 g/m² and

24Hr, 40 degree C, and 90%RH extent. It is thought even in 40 g/m² and 24Hr, 40 degrees C, and 90%RH extent that it is usable. About a minimum, by 0.3g/m² and 24Hr, 40 degrees C, and below 90%RH, since the time amount which desiccation takes becomes long too much, the above-mentioned range takes this into consideration. On the other hand, it is the reason prescribed 40 g/m² and 24Hr, 40 degrees C, and that even 90%RH extent is from a viewpoint whether decade extent of a polycarbonate is appropriate as an operation field, about the upper limit. However, the above-mentioned convention offers the meaning as one standard to the last.

[0051] As mentioned above, although the container was set up with plastics with fixed moisture vapor transmission and indicated per [which obtains a desiccation colloid crystal] example using this moisture permeability After producing a colloid single crystal in the container made from plastics, this desiccation process stops the pouring-in opening 1, is performed, and is performed by putting this condition for a long period of time by spreading the moisture inside a container and emitting it through the plastics which is the wallplate of a container. If it sees from a viewpoint of desiccation actuation, the emission rate of moisture is very slow, and although it is that the emission phenomenon of such moisture can be disregarded in most cases if it is usual, in this invention, the small emission phenomenon of moisture is very important for this extent that can be disregarded. That is, rapid evaporation gives a desiccation strain to the film obtained, it becomes the cause of a crack, or it leaves an inconvenient distortion on optics, and is not desirable. Like this invention, there are very few amounts of the sample in a capillary tube, it can receive, and according to the area of the plastics which touches this being very large relatively, sufficient time amount can be spent by emission of few moisture, and a desiccation colloid crystal can be obtained from several weeks in about several months. This is an important technical matter, also in order to avoid un-arranging [which was mentioned above].

[0052] Anyway, in the desiccation process performed through the whole wallplate of this container, it dares close the pouring-in opening 1 of a container, and it is important to make it moisture not evaporate quickly here. If pouring-in opening is not closed, desiccation advances quickly from near pouring-in opening, it becomes uneven desiccation, and generating of defects, such as a crack resulting from the heterogeneity of desiccation into a colloid crystal and distortion, takes place. If pouring-in opening is closed, from the whole surface of the capillary tube which touched the colloid crystal, removal of moisture will be carried out to homogeneity very slowly, and the high desiccation colloid crystal of single crystal nature with few defects will be obtained by this.

[0053] Although that the configuration of that pouring-in opening is a taper configuration may naturally contain as an embodiment the container used for the desiccation colloid crystal production approach based on the plastic envelope which has the fixed moisture vapor transmission described above enforcing this approach to enforce, facing, there is not necessarily no necessity which is the thing of this specific structure. That is, in production using the moisture vapor transmission of a plastic envelope of a desiccation colloid crystal, it can carry out also in the container of the usual structure, and as compared with the approach which was being dried through the open end of old pouring-in opening, the operation effectiveness according to rank that homogeneity desiccation can be carried out is done so, and the meaning as independent invention is accepted. Claim 7 and the 7th solution means corresponding to this have indicated the technical matter of this point.

[0054] As mentioned above, as a class of plastics for which were suitable, if the container for obtaining the colloid crystal of this invention based on plastic material is not the thing excellent in the optical transparency in addition to the moisture vapor transmission which carried out the

forecited convention, it will not consist of a place where to excel in transparency is also demanded. Therefore, although these things must be synthetically taken into consideration in selection of plastics, if synthetically excellent plastics is mentioned as a result of taking lessons from the physical properties of plastics etc. and carrying out **** examination in this invention, things generally known, such as methacrylic resin, polycarbonate resin, and polystyrene resin, can be mentioned. namely, -- without the plastic material to be used is especially based on an ingredient with difficult acquisition -- rather -- general -- acquisition -- an easy ingredient can be used. In addition, since it is inconvenient if the container quality of the material disturbs polarization in order for a colloid crystal to have a dependency in an optical property to polarization and to use this polarization dependency, it can be said that the one as a property of resin where a photoelastic coefficient is smaller is good, and methacrylic resin is most suitable among three kinds of above-mentioned resin from this viewpoint.

[0055] As mentioned above, although the reference indication was carried out about the conditions which obtain the desiccation colloid crystal based on plastics with moisture permeability In the colloid crystal offered as a component as it is after single crystal-ized actuation termination of a colloid crystal, without drying Since it needs to be necessary to maintain the condition over a long period of time, namely, it is necessary to prevent desiccation and to maintain a moisture content for preservation, when using plastics Since unlike glass plastics has moisture permeability even when it is slight, it must be careful of that rather. In that case, it is important that moisture vapor transmission is small (the moisture vapor transmission at the time of setting thickness to 1mm as a standard 0.3g/m 2-24 Hr, 40 degrees C, and under 90%RH) excellent in optical transparency as the quality of the material suitable for the mothballs of a colloid crystal. Specifically, amorphous polyolefin resin is excellent. as a concrete trade name -- APO (trade name of the company) of Mitsui Chemicals, Inc. -- the same -- Appel (trade name of the company) of the company -- ZEONEX (trade name) of Nippon Zeon Co., Ltd. is mentioned further. The moisture vapor transmission of these amorphous polyolefine system resin products has reached 0.1 g/m² and 24Hr, 40 degrees C, and below 90%RH per mm in thickness. Moreover, each of these resin has a small photoelastic coefficient, and it can be said that it is very convenient also at the point which can form the container in which polarimetry is possible. [Effect of the Invention] As mentioned above, according to this invention, removal of a pouring-in machine can be performed, without impregnation of a sample being able to make mixing of air bubbles there be nothing, and giving pressure fluctuation simply, after single-crystal-izing of the colloid crystal by the pressure variation actuation with a pouring-in machine. In a capillary tube, the colloid single crystal of high quality without turbulence by the effect of air bubbles and excessive pressure fluctuation is producible with such effectiveness. Moreover, according to this invention container by the plastics which has specific moisture vapor transmission especially, since the whole sample can be mostly dried slowly to homogeneity with the same rate of drying, a crystalline high desiccation colloid crystal is obtained from the condition which produced the single-crystal-ized colloid crystal. And the process is very simple and is high. [of practicality]

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The explanatory view of single crystal-ized actuation using the conventional plate-

like capillary tube container.

[Drawing 2] The explanatory view showing the structure and the usage of the container concerning this invention.

[Drawing 3] The enlarged drawing showing the relation between a pouring-in machine and pouring-in opening.

[Description of Notations]

- 1 ... Pouring-in opening
- 2 ... Plate-like capillary tube container (colloid single crystal production container)
- 3 ... Pouring-in machine
- 4 ... Pouring-in machine point
- 5 ... The interior of a capillary tube
- 6 ... Colloidal solution
- 7 ... Taper section
- 8 ... Piston

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2003-212700
(P2003-212700A)

(43) 公開日 平成15年7月30日 (2003.7.30)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	データベース (参考)
C 3 0 B 29/54		C 3 0 B 29/54	4 G 0 7 7
7/00		7/00	
29/06	5 0 1	29/06	5 0 1 Z

審査請求 有 請求項の数 7 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2002-12871(P2002-12871)

(22) 出願日 平成14年1月22日 (2002.1.22)

(71) 出願人 301023238

独立行政法人物質・材料研究機構
茨城県つくば市千現一丁目2番1号

(72) 発明者 澤田 勉

茨城県つくば市千現一丁目2番1号 独立
行政法人物質・材料研究機構内

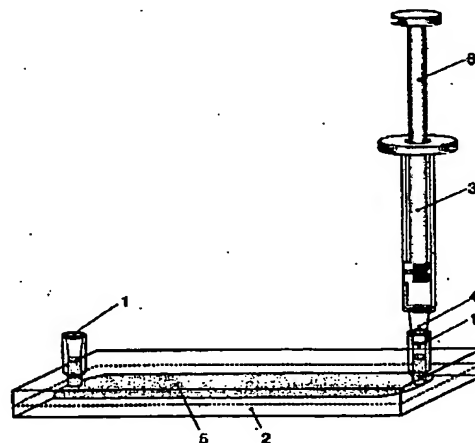
Fターム (参考) 4G077 AA02 BA04 BF04 CB02 CB06

(54) 【発明の名称】 コロイド単結晶作製容器、この容器を用いたコロイド結晶の単結晶化方法、及び乾燥コロイド結晶作製方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 平板状キャピラリーを有する容器内において、一軸方向にコロイド溶液を流動させ、コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド単結晶を作製する場合、コロイド溶液の注液によって容器内に気泡が混入したり、単結晶形成後の注液器抜取りによって形成されたコロイド単結晶が乱されたりせず、さらには、生成した単結晶の均一乾燥が可能なコロイド単結晶作成手段を提供する。

【解決手段】 容器両端に突設して設けられた注液口1と、該注液口に連続して0.5ミリ以下のギャップを有する平板状キャピラリー5を有するコロイド単結晶作製容器2において、該注液口1の構造を、入口側開口部を広く、奥を狭くテーパを付して設定する。容器は、一定の透湿性を有する透明プラスチックであり、コロイド溶液として水を分散媒とするコロイド溶液を用いる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】容器両端に突設して設けられた注液口を有し、該注液口に連続して0.5ミリ以下のギャップを有する平板状キャピラリーを有するコロイド単結晶作製容器であって、該注液口の構造を、入口側開口部を広く、奥を狭くテーパを付して設定すると共に、容器の材質は、少なくともキャピラリー領域は透明材料によって構成されていることを特徴とするコロイド単結晶作製容器。

【請求項2】請求項1記載の容器が、ガラス製であることを特徴とする請求項1記載のコロイド単結晶作製容器。

【請求項3】請求項1記載の容器が、プラスチック製であることを特徴とするコロイド単結晶作製容器。

【請求項4】請求項1、2又は3記載のコロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、該コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド結晶を単結晶化することを特徴とするコロイド単結晶の作製方法。

【請求項5】請求項1又は2記載のコロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、該コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド結晶を単結晶化し、次いで乾燥工程に付すことを特徴とする乾燥コロイド結晶の作製方法。

【請求項6】請求項3記載のコロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、該コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド結晶を単結晶化し、次いでそのプラスチック材質の有するわずかな透湿性によって水分を緩慢に放出し、これによって乾燥結晶を得ることを特徴とする乾燥コロイド結晶の作製方法。

【請求項7】水を分散媒とするコロイド溶液を、プラスチック材質の平板状キャピラリー容器中で剪断流を与えることによりコロイド単結晶に形成した後、そのプラスチック材の僅かな透湿性を利用した水分の緩慢な放出により、コロイド単結晶を乾燥することを特徴とした乾燥コロイド結晶の作製方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、光学素子材料となりうるコロイド単結晶を作製し且つ作製された結晶を保存するためのコロイド単結晶作製容器とこの容器を使用してコロイド単結晶を製作するコロイド結晶の単結晶化方法、及び乾燥コロイド結晶の作製方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】水や有機溶媒等の液体媒質に高分子ラテックスやシリカ等の微粒子を分散したコロイド溶液においては、適切な条件下において、粒子が三次元的に規則的に配列した構造が自発的に形成され、このような状態にあるコロイド溶液はコロイド結晶と呼ばれており（参考文献：日本化学会編「コロイド科学I」119頁）、光学

材料としての利用に注目されている。

【0003】通常、コロイド結晶は、数ミリ以下のサイズの結晶ドメインが集合した多結晶状態で得られるが、本発明者等においては、コロイド溶液に剪断流動を与えることによって、平板状のキャピラリー内にセンチメートルサイズに及ぶ巨大な単結晶ドメインを形成させることに成功し、これに基づいて先に特許出願した（特願2000-217660号）。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】従前の技術、すなわち上記先願発明の概要は、図1に示すように容器両端にコロイド溶液を注液するための円筒状注液口が容器外壁に突設して設けられ、且つ該円筒状注液口に接続して狭い平板状ギャップを呈したキャピラリー空間が設けられているコロイド単結晶作製容器に、その一端の注液口からコロイド結晶状態にあるコロイド溶液を注液し、容器内をコロイド溶液にて満たし、次いでコロイド溶液に剪断流動を与え、引き続き、平板状ギャップを呈したキャピラリー空間内で基板面に平行に一軸方向に流動させた後、静止させ、三次元的な均一性に優れた組織を有するコロイド結晶であるコロイド単結晶を形成させるものであった。その間のコロイド溶液の注液から、剪断流動の付与、一軸方向の流動に至る一連の操作は、まず、針のついたシリンジ（注射器）にコロイド溶液を満たし、針を、円筒状注液口に差込み、シリンジのピストン操作によってコロイド溶液を注液口から注液し、注液操作完了後、針をつけない空のシリンジをチューブを介することによって注液口に密閉して取り付け（図1）、容器内のコロイド溶液、すなわちキャピラリー内の試料溶液に剪断流動のための圧力をかけていた。

【0005】しかし、この方法は、後述するように、試料コロイド溶液を容器に注液する過程でキャピラリー内に気泡が混入しやすいという点で問題があった。一旦キャピラリー内に混入した気泡は取り除くことが難しく、この操作に続く流動による単結晶化処理において障害となっていた。（課題1）

【0006】また、結晶を得る一連のシリンジ操作を完了後、該シリンジは注液口から抜き取るが、従前の方法ではシリンジの先端は、前記したようにチューブを介して注液口に接続されており（図1）、単結晶を得るプロセス操作後、シリンジをチューブから、あるいはチューブごと取り外そうとすると、キャピラリー部に圧力変動が掛かり、一旦単結晶化された試料の状態を乱してしまうという不都合があった。（課題2）

【0007】また、単結晶性の良い大きなドメインの乾燥コロイド結晶を得るためには、平板状キャピラリー内において剪断流動を付与することによって単結晶を形成後、これを極めてゆっくりと全体的に均一に乾燥させる必要がある。乾燥コロイド結晶は、溶媒の存在しているコロイド結晶と比較して、粒子とそれ以外の部分との屈

折率の差が大きいことから、フォトニック・バンド・ギャップ（参考文献：J.D.Joannopoulos他著、藤井・井上訳「フォトニック結晶」コロナ社）のより大きな、機能性に優れた光学素子材料としての用途開発に結びつくものと期待されている。

【0008】しかしながら、従前の方法、すなわち上記先願発明の方法においては、単結晶を形成し、次いでシリンジを抜き取った後の乾燥工程は、両端に設けられている注液口を開放し、そこから溶媒を蒸発させることによって、乾燥させる態様によって行われていたが、かかる乾燥方法では、開放端に近いところとこれより遠い奥の方とで不均一にならざるを得ず、均一な乾燥速度に基づいて単結晶性の高い乾燥コロイド結晶を得ることは極めて困難であった。（課題3）

【0009】本発明は、コロイド単結晶を得るために、コロイド溶液を容器に注液するプロセスにおいても、キャピラリー内に気泡が混入することのない、そして、単結晶形成後の注液器抜き取り操作においても、キャピラリーに圧力変動を生じさせることのないコロイド単結晶作製容器を提供しようというものであり、また、この容器の使用によって、前示不都合な事態が生ずることのないコロイド単結晶あるいは乾燥コロイド結晶の作製方法を提供しようというものである。

【0010】さらにまた、前記容器を特定の材質にて設定することによって、前記諸問題の解決に加えて、コロイド結晶の均一乾燥をも実現し得るコロイド単結晶作製容器を提供し、あるいは、この手段による均一乾燥によって、単結晶性の高い乾燥コロイド結晶を得る方法を提供しようというものである。

【0011】

【課題解決するための手段】本発明者において鋭意研究した結果、(i) 気泡が生ずる原因は、シリンジの針を介した注液によっては、狭いキャピラリーにおける液体の先端界面は、必ずしも一様に進行せず、キャピラリーの抵抗や濡れ性の差等によって遅速が生じ、これによって気泡の巻き込み現象が生じるものであること、そしてこれらの現象は、要するに注液する際における力が液体に均等且つ十分に作用しないことから引き起こされる現象であること、また(ii) 圧力変動は、シリンジを抜き取る時に加えられる力が、キャピラリー内の単結晶化処理されたコロイド溶液に作用し、これが圧力変動となって影響する結果生ずる現象であることを突き止めた。

【0012】そして、これらの現象を生じないようにするためには、コロイド溶液を注液する際には、むしろコロイド溶液を圧入することによって、力が確実に液体に作用するようにし、そして、単結晶形成後のシリンジ抜き取りの際には、力が作用しないようにすることが必要であることから、この要件を満たす手段につきさらに鋭意研究を進めた結果、注液手段先端部の差込口として注液口の構造を図2、あるいはその注液口と注液手段先端との

取り付け関係を拡大した図3に示すように、入口から奥にかけて入口を広く、奥を狭くテーバーを付して設定することによって解決しうることを見いだした。

【0013】すなわち、注液口をテーバーを付した構造とすることにより、先端に針を付した注液器を使用する必要はなく、また密着性を確保するためチューブを使用する必要もない、すなわち、注液器をシリンジに基づいて述べると針を取り付けるシリンジ先端部分を注液口に差込むだけで、容器に対して確実に密着することが出来、その結果、圧入する力を確実に液体に作用することが出来、反対に抜き取りの際にはテーバーから単に抜き取るだけの操作に拠るだけで、キャピラリー内に形成された単結晶に力が作用することはない。

【0014】これを、従前のように単に円筒状を呈した構造のもので実施しようとしても、注液器先端と注液口との関係は、両者が寸法的に一致するよう形成され、これによって密着関係を維持しうるようにした場合以外は、密着性を担保することが出来ず、すなわち、少しでも寸法の異なるものを使用しても、圧入操作に支障を来すこととなり、あるいは、両者を寸法的に一致させて設定し、密着性を保持することができるよう形成されている場合においては、抜き取りの際に無理な力を要することとなり、この力が結晶に作用する結果、整列したコロイド粒子よりなる結晶を乱し、悪影響を与えることとなる。

【0015】本発明は少なくとも注液口の構造をテーバー形状に構成することにより、両者の装着、脱着がスムーズに行われ、前示不都合を生ずることなく、所期のねらいを達成することができるものである。

【0016】なお、本発明は、その前提技術とする先願発明においては、注液操作、剪断流動を付与する一連の全操作は、専らシリンジを使用し、シリンジのピストン操作によって行なわれていたものであって、その間には針を介した注液操作が実施されていたものである。したがって、従前の技術に関連して述べる際には、注液手段は専らシリンジに基づいて述べているが、本発明のねらいは如上のとおりであり、該全操作期間を通じ針による注液は不要とするものであって、そのための手段として開示した注液口の構造より、従前と同様、針を抜いた状態のシリンジを使用しうことは勿論、それ以外の注液手段も使用することができる。

【0017】すなわち、注液口の構造をテーバーを付した構造に設定した点の意義は、当該注液手段についても、該注液口に対応した構造のものを使用することを事実上意味しているものであり、図2に示すように針を抜いた構造のシリンジは勿論、これに限らず同様の構造を有するもの、例えば先端がテーバー状に先細を呈しているスポイト、ピペット等の液体圧入手段は、これを使用することができる。ただし、針を装着してなるシリンジについては、排除されることは、如上の説明からも明ら

かであろう。

【0018】いずれにしても、シリンジ先端の針を介し、あるいは単に円筒形注液口にて注液操作を行っていた従来技術に比し、本発明は、如上の構成を講ずることによって、これに対応した構造を有する注液器を注液口に単に差込むだけの操作によって気泡の巻き込みもなく、また、取り扱いに厄介なチューブを用いる必要もなく、そのままコロイド溶液を容器に圧入し、コロイド溶液に剪断流動を付与し、単結晶を形成することが出来、そしてまた、コロイド単結晶形成後の注液器の抜き取りも、単に抜き取りだけの操作要領によって、力を要することもなく、容易に脱離することが出来、生成したコロイド単結晶に対してこれを乱すような力が作用するようなこともない。

【0019】また、(iii) 容器に封じ込められている分散媒を含んでいるコロイド結晶を均一に乾燥する手段についても鋭意検討した結果、コロイド結晶の原料液として、水を分散媒とするコロイド溶液を使用し、一方結晶保存用容器としては、一定の透湿性を有するプラスチックによって製作構成されてなるものを使用することによって、解決しうることを見いだしたものである。

【0020】従前の先願発明で開示した方法では、乾燥は、容器全体に収容したコロイド結晶から見ると局所にすぎない注液口開放端を通じて行われ、極めて局所に偏在して行われていることから、不均質にならざるを得なかったものであり、これを解決するには、全体的に乾燥させる必要があるところ、この条件を満たす手段につき鋭意研究した結果、容器の材質を特定の性質に基づいて選定し、且つこれに特定の分散媒によるコロイド溶液を選択、組み合わせることによって、コロイド結晶全体を均一に乾燥しうることを見出したものである。

【0021】すなわち、容器は、一定の透湿性のあるプラスチックを選定、使用し、これに水を分散媒としたコロイド溶液を組み合わせることによって、得られた結晶から分散媒の水分を、容器の壁材全体を通じて放出させ、これによって注液口に偏在した局部的蒸発域による従来技術に比し、容器全面にわたりほぼ同一乾燥速度にて、換言すれば全体的に均一に乾燥することができものである。

【0022】以上述べたとおり、本発明の第1の解決手段は、(1) 容器両端に突設して設けられた注液口を有し、該注液口に接続して0.5ミリ以下のギャップを有する平板状キャピラリーを有するコロイド単結晶作製容器であって、該注液口の構造を、入口から奥にかけて入口を広く、奥を狭くテーパーを付して設定すると共に、容器の材質は、少なくともキャピラリー領域は透明材料によって構成されていることを特徴とするコロイド単結晶作製容器としたことである。

【0023】本発明の第2の解決手段は、(2) 前記第1の解決手段に示す容器が、ガラス製であることを特徴

とするコロイド単結晶作製容器としたことである。

【0024】本発明の第3の解決手段は、(3) 前記第1の解決手段に示す容器が、プラスチック製であることを特徴とするコロイド単結晶作製容器としたことである。

【0025】本発明の第4の解決手段は、(4) 前記解決手段1、2又は3記載のコロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、該コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド単結晶を形成することを特徴とするコロイド結晶の単結晶化方法である。

【0026】本発明の第5の解決手段は、(5) 前記解決手段1又は2記載のコロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、該コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド単結晶を形成し、次いで乾燥工程に付すことを特徴とする乾燥コロイド結晶の作製方法である。

【0027】本発明の第6番目の解決手段は、(6) 前記解決手段3記載のコロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、該コロイド溶液に剪断流動を与えることによってコロイド単結晶を形成し、次いでそのプラスチック材質の有するわずかな透湿性によって水分を緩慢に放出し、これによって乾燥結晶を得ることを特徴とする乾燥コロイド結晶の作製方法である。

【0028】本発明の第7番目の解決手段は、(7) 乾燥コロイド結晶を得るにおいて、特に特定構造によることなく、一定の透湿性を有するプラスチック製の容器内にコロイド結晶を作製し、該容器の有する僅かな透湿性を利用した水分の緩慢な放出により、コロイド結晶を乾燥することを特徴とするものである。

【0029】ここに、第1の解決手段において、その前段の事項、すなわち、容器両端に突設して設けられた注液口を有し、該注液口に接続して0.5ミリ以下のギャップを有する平板状キャピラリーを有するコロイド単結晶作製容器とした点は、従前の技術、すなわち本発明の前提技術とする先願発明と共通している技術的事項を指している。本発明は、その狭い平板状キャピラリー内にコロイド結晶状態をとるコロイド溶液を注入して満たし、次いで、コロイド溶液に剪断流動を与え、これによってコロイド粒子の配列方向を描え、コロイド単結晶を形成するものであり、そのギャップの設定を0.5ミリを上限とした理由は、ギャップがこれより広くなると、流動内の剪断力が弱くなり、コロイド単結晶の形成が困難になることより、規定したものである。

【0030】後段の事項、すなわち、注液口の構造を、入口側の開口部を広く、奥側を狭く、テーパーを付して設定した点は、これによって、容器にコロイド溶液を注液し、剪断流動を与える注液器は、該注液口の形状に対応した先細状のテーパー形状を有する注液手段、例えば図2に示すように針を取った状態のシリンジに限らず、スポイト、ピペット、マイクロピペット等の注液手段を

使用することが出来、これによって、注液器と容器とを密着することが出来、コロイド溶液を気泡を巻き込むことなくキャピラリーに高速で圧入し、コロイド溶液に剪断流動を付与し、単結晶を形成することができ、従来の針のついたシリンジ操作に起因する気泡の巻き込みを防止することが出来、またチューブを介することなく操作するものであるため、単結晶形成後の注液器の抜き取りもコロイド単結晶を乱す等の悪影響を与えることもなく簡単に抜取ることができる等の優れた作用効果が奏せられるものである。

【0031】なお、気泡が混入する原因については、平板状の狭いギャップのキャピラリーに針のついたシリンジ操作によって液体を注入するにおいては、注入するための手段たるシリンジ先端の針を、注液口に差込み、液体を注入しようとしても、該注液口が外に向けて開放されているため、針からキャピラリーに流入していく液体に圧力が掛かりにくい状態となり、また、キャピラリーの流体抵抗のため液体の流入速度が遅くなる。一方、液体と容器内壁の濡れ方は、容器内壁の清浄度の場所による微妙な差や、キャピラリーの中心部であるか端かといった局所的な形状の違いに依存して異なるため、キャピラリー内に流入していく液体の最前線の液面の形状はそのような濡れ方の差異を反映して湾曲していく傾向にある。液体の流入速度が遅いと、最前線の液面の湾曲が高じて、ついには気泡を抱き込む結果となる。

【0032】実際、本発明の前提としている従前の技術においては、図1に示すように円筒状に形成された注液口に、シリンジの針を差込み、針による緩慢な注液態様によるものであったため、前示気泡の巻き込み現象が生じやすく、その結果、気泡が混入し易い状況にあった。すなわち、容器の注液システムにも一端の原因があったことは否めないものであった。しかし、注液口をテーバーを付した構造とする本発明の容器によると、すなわち、図2、図3に示すように注液口がテーバー形状を呈している容器であれば、テーバー部7によって容器と注液器との間を密着できるため、注液器の圧入手段（ピストン）により試料液体を強制的に高速に注入することが可能となり、キャピラリー内に流入していく液体の最前線の液面における気泡の混入を防ぐことができる。

【0033】そして、注液操作に引き続く単結晶化操作が終われば、注液器先端を注液口から取外すが、このとき、テーバー形状で当接しているため、注液器を差込み方向とは逆方向に抜き取るだけで、注液器先端と注液口との密着関係を簡単に解消できるので、注液器を簡単に取り外すことができる。これに対して、テーバーが付されていない前提技術においては、図1に示すように、チューブを介して接続されていたため、シリンジをチューブから取りはずそうとすると、あるいは、チューブごと取りはずそうとするとキャピラリー部に圧力変動が掛かり、一旦単結晶化された試料の状態を乱してしまうこと

があった。すなわち、取り外す際に、少しの力が加わってしまうだけで、これが圧力変動となってキャピラリーに伝わるものであるが、本発明はテーバーが付されているため、その取り外しは抜き取りだけでキャピラリーに圧力変動を与えることはない。

【0034】なお、一度混入した気泡は、これを取り除くことは事実上不可能であるため、一旦気泡が混入したような場合、製品価値はなくなり、高価な容器と共に廃棄処分せざるを得ないこととなる。本発明によって、すなわち、注液口の構造をテーバー構造とする簡単な手段を講ずることによって、気泡の発生を抑えることができるようになった点は、極めて大きな意義がある。

【0035】(1)、(2)、(3)の解決手段において容器の材料を、透明材料とした点、そしてガラスとした点、あるいはプラスチックとした点は、容器内部に形成されたコロイド単結晶の品質の光学的検査を行う必要があること、また、コロイド結晶は、製作した容器内に収容したまま封止することによって素子化し、容器ごとコロイド結晶素子として使用しようとする実施態様もあることから、容器は透明材料によって作られている必要があり、このための構成である。そして、ガラス、プラスチックは、そのための具体的な材料選定を開示しているものである。

【0036】次に、(4)、(5)の解決手段は、前記解決手段1、2又は3記載のコロイド単結晶作製容器を使用してコロイド結晶を単結晶化する方法、さらには乾燥コロイド結晶を作製する方法を開示するものである。すなわち、前示コロイド単結晶作製容器にコロイド溶液を圧入し、容器内において該コロイド溶液に剪断流動を与え、これによって単結晶を形成するものであり、さらに乾燥工程を付加することによって乾燥コロイド結晶を作製するものである。この場合の乾燥方法は、本発明で前提技術とする先願発明と同様の方法によって行われる。すなわち、容器両端に突設して設けられた注液口を開放し、ここから分散媒をゆっくりと時間をかけて蒸発させることによって行われる。

【0037】(6)、(7)に記載の解決手段は、特有な乾燥手段によって、乾燥コロイド結晶を作製する方法を開示するものである。これによって、これまでの該特有な乾燥手段によらない乾燥手段によっては達成し得なかった均一乾燥が可能となり、単結晶性の高い乾燥コロイド結晶を得ることができるものである。この方法において、そのための要件事項とするところは、使用するコロイド溶液は、水を分散媒とするコロイド溶液を選択すると共に、使用する結晶作製容器も、一定の透湿度を有するプラスチックによって作製されたものを選択するものであり、これによって単結晶を形成後の乾燥工程は、専らそのプラスチック材質の有するわずかな透湿度によって容器全体から水分を緩慢に放出することによって乾燥し、これによって単結晶性の高い乾燥コロイド結晶を

得るものである。

【0038】

【本発明の実施の形態及び実施例】本発明のコロイド単結晶作製容器の基本構成とこの容器を使用したコロイド結晶の単結晶化方法とを図2に基づいて説明する。図2において、2は平板状キャピラリーを有するコロイド単結晶作製容器である。容器は、硬質で透明な材料で出来ている。例えば石英ガラス、各種光学ガラス、ポリカーボネート、アクリル等のプラスチックが挙げられる。容器内部は、ギャップ0.5ミリ以下に設定したことによって平板状のキャピラリー5が形成されている。容器の両端には注液口1が突設して設けられ、その一端の注液口は内部の平板状キャピラリー5からさらに他端の注液口へと続いている。3は注液器であり、4は注液器先端部である。

【0039】注液口1は、拡大図3に示すように、入口側の開口部を広く、奥を狭くテーバーを付して設定されている。このテーバーによって注液器の先端を差し込むだけの操作によって、注液器の先端部は注液口に密着して当接し、取り外しも簡単に行うことができる。なお、このテーバー形状は、市販の標準的な注液器すなわちルーシリンジ3の注射針取り付け部分4に対応した形式のものを採用すればよく、ことさら特殊なものである必要はない。

【0040】注液器に求められる機能は、コロイド溶液を容器に圧入し、あるいはコロイド溶液に剪断流動を与え、平板状キャピラリー空間に沿って一軸方向に流動させる等の圧力操作を行うことが求められているものであり、最も典型的にはシリンジが挙げられるが、上記操作が可能であればシリンジに限らずスポイト、ピペット等も使用しうることは前述したとおりである。

【0041】なお、本発明の前提技術とする先願発明の場合は、図1に示すように円筒形状の注液口に、針のついたシリンジを差し入れてコロイド結晶溶液を注入していたが、この場合はキャピラリーに流入していく試料液には圧力がかかりづらく、また、キャピラリーの流体抵抗のため液体の流入速度が遅くなる。一方、液体と容器内壁の濡れ方は、容器内壁の清浄度の場所による微妙な差や、キャピラリーの中心部か端かといった局所的な形状の違いに依存して異なるため、キャピラリー内に流入していく液体の最前線の液面の形状はそのような濡れ方の差異を反映して湾曲していく傾向にある。液体の流入速度が遅いと、最前線の液面の湾曲が高じて、ついには気泡を抱き込む結果となる。実際、テーバーが付されていない注入方法では気泡が混入してしまう確率が高かった。

【0042】しかし、注液口が上記のようにテーバー形状をとっている容器としたことにより、テーバー部分のところで密着して当接できるので、容器と注液器との間は確実に密閉できるため、注液器のピストンの押し込み

により試料液体を強制的に高速に注入することが可能であり、キャピラリー内に流入していくコロイド溶液の最前線の液面の形状が、湾曲する現象が顕れる前に素早く注液を完了することができ、気泡の混入が阻止される。

【0043】ここに、コロイド粒子は、ポリスチレン、ポリメチルメタアクリレート等の有機高分子粒子をはじめ、さらにはシリカ粒子、金、銀などの金属粒子、チタン、鉄などの各種金属の酸化物粒子などが挙げられる。分散媒としては、水をはじめ、各種アルコール、ベンゼンなどの有機溶媒等が挙げられる。

【0044】まず注液器にコロイド結晶状態をとるコロイド溶液を採取し、注液口に注液器先端を密着するまで差し込み、コロイド溶液を容器内に圧入する。圧入された溶液は、突設した注液口から屈曲した流路を通過して平板状キャピラリーに注入され、他端の注液口まで溶液で満たされる。以上の操作によって、容器にコロイド溶液6を圧入した後、注液器のピストンを押し引きすることでキャピラリー内のコロイド結晶に剪断流動を与えることにより、コロイド溶液は単結晶化する。この操作が終われば、注液器先端を容器から必要に応じて取り外すが、このとき、テーバー形状で結合しているため、注液器先端と注液口との密着状態を簡単に解消できるので、ほとんどキャピラリー内部に圧力変動を与えずに取り外すことができる。

【0045】従来であれば、シリンジ先端と容器に突設した注液口とをチューブで結合して密閉していたので（図1）、注液器すなわちシリンジを取り外すときに、チューブから引き抜く工程でキャピラリー内部に圧力変動が伝わり、せっかく単結晶化した試料の結晶組織を乱す可能性が高かったが、上記手段によって、この不都合を解消することが出来た。

【0046】コロイド単結晶が形成された後は、その両注液口を封止することによって素子化され、容器ごとコロイド結晶素子とする。あるいは、乾燥コロイド結晶を得ようとする場合は、注液口を開放して分散媒をゆっくりと蒸発させることにより乾燥結晶を得るものである。

【0047】以上は、本発明のコロイド単結晶作製容器を使用してコロイド単結晶並びに乾燥結晶を作製する方法を説明したが、容器の材質を一定の透湿性を有するポリカーボネートやアクリル等のプラスチックによって作られた容器を使用し、コロイド溶液として水を液体媒質とするコロイド溶液を使用することによって、容器を通じて、すなわち容器壁材を構成しているプラスチックを通じて水を蒸発、乾燥させ、以て乾燥コロイド結晶を得る方法について説明する。

【0048】プラスチックの水分を透過する性質は、「透湿性」、その値を示す量は「透湿度」が通常用いられている。ここに、透湿度についてはJIS規格(JIS Z 0208)に規定されており、本発明において透湿度を表す数値はこの規定に基づいた数値を指している。厚さを1mm

としたときのプラスチックの透湿度（単位は、 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{Hr}$ 、 40°C 、 $90\%\text{RH}$ 、すなわち、 40°C 、相対湿度 90% の環境で面積 1m^2 のプラスチックを24時間かけて透過する水分重量を示す値で表される。）を具体的に開示すると、ポリカーボネイトが約4、ポリスチレン約3、ポリプロピレン約0.3、高密度ポリエチレン0.13、アベル（三井化学株式会社のプラスチック；商品名）0.09の順であった。

【0049】本発明者が実際に実験で使用したポリカーボネイト容器〔厚さ 1mm 、表面積約 0.001m^2 （ 10cm^2 ）、単位面積当りのコロイド溶液重量 $100 \text{g}/\text{m}^2$ から $500 \text{g}/\text{m}^2$ （容器内の実際の溶液量は 0.1g から 0.5g ）〕について上記透湿度に基づき、コロイド結晶の乾燥時間を試算してみると、乾燥に要する時間は計算上は25日から125日となる。これを実際の乾燥実験と対比すると、乾燥実験では、乾燥コロイド結晶を得るのに、数十日から数ヶ月を要し、計算上と実際の実験結果とでは、さほどの違いはなく、ほぼ一致した。

【0050】以上に示す実験や各種資料から、乾燥コロイド結晶を製造するのに適したコロイド結晶形成用容器の材質は、厚さを 1mm とした場合の透湿度が $0.3 \text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{Hr}$ 、 40°C 、 $90\%\text{RH}$ 程度から $40 \text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{Hr}$ 、 40°C 、 $90\%\text{RH}$ 程度位までは、使用可能と思われる。上記範囲は、下限については、 $0.3 \text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{Hr}$ 、 40°C 、 $90\%\text{RH}$ 以下では乾燥に要する時間が長くなり過ぎるためこれを考慮したものである。一方、上限については、ポリカーボネイトの十倍程度位は実施領域として妥当ではないかとの観点から、 $40 \text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{Hr}$ 、 40°C 、 $90\%\text{RH}$ 程度位までと規定した所以である。ただし、上記規定は、あくまでも一つの目安としての意義を提供するものである。

【0051】以上、容器を一定の透湿度のあるプラスチックによって設定し、この透湿度を利用して、乾燥コロイド結晶を得る例につき開示したが、この乾燥プロセスは、プラスチック製の容器中にコロイド単結晶を作製した後、注液口1を封じて行なわれ、この状態を長期間静置することによって、容器の壁材であるプラスチックを通して容器内部の水分が拡散し放出されることによって行われる。乾燥操作という観点から見ると、水分の放出速度は非常に遅く、通常であれば、この様な水分の放出現象は無視しうる場合がほとんどであるが、本発明においては、この無視しうる程度に小さい水分の放出現象が、極めて重要である。すなわち、急速な蒸発は、得られる膜に乾燥ひずみを与え、ひび割れの原因となったり、光学上不都合な歪みを残し、好ましくない。本発明のように、キャピラリー内の試料の量が非常に少なく、対して、これに接するプラスチックの面積が相対的には非常に大きいことにより、僅かな水分の放出により、充分な時間をかけ数週間から数ヶ月程度で乾燥コロイド結晶を得ることができる。このことは、前述したような不都合を避けるためにも重要な技術的事項である。

【0052】いずれにしても、この容器の壁材全体を通じて行われる乾燥プロセスにおいては、容器の注液口1を敢えて封止し、ここより水分が急速に蒸発しないようにすることが肝要である。注液口を封止しなければ、注液口付近から乾燥が急速に進行し、不均一な乾燥となり、コロイド結晶に乾燥の不均一性に起因するクラックや歪み等の欠陥の発生が起こる。注液口を封止すれば、コロイド結晶に接したキャピラリーの全面から、極めて緩慢にかつ均一に水分の除去が行われ、これによって、欠陥の少ない単結晶性の高い乾燥コロイド結晶が得られる。

【0053】以上述べた一定の透湿度を有するプラスチック容器に基づく乾燥コロイド結晶作製方法は、この方法を実施するに際して使用する容器は、その注液口の形状が、テーパ形状であることは当然実施態様として含むものではあるが、必ずしも、該特定の構造のものである必然性はない。すなわち、プラスチック容器の透湿度を利用する乾燥コロイド結晶の作製の場合、通常の構造の容器においても実施でき、従前の注液口の開放端を通じて乾燥していた方法に比して、均一乾燥するという格別の作用効果が奏せられ、独立した発明としての意義が認められるものである。請求項7、そしてこれに対応する第7番目の解決手段はこの点の技術的事項を記載しているものである。

【0054】以上、プラスチック材料に基づく本発明のコロイド結晶を得るための容器は、透明性に優れたものであることも要求されているところから、適したプラスチックの種類としては、前示規定した透湿度以外にも、光学的透明性にも優れたものでなければならない。したがって、プラスチックの選択に当たっては、これらのことを総合的に参酌しなければならないが、本発明においてはプラスチックの物性等につき繰々検討した結果、総合的に優れたプラスチックを挙げると、メタクリル樹脂、ポリカーボネイト樹脂、ポリスチレン樹脂等一般的に知られたものを挙げるができる。すなわち、その使用するプラスチック材料は、特に入手困難な材料によることもなく、むしろ一般的にも入手容易な材料を使用することができる。なお、コロイド結晶は偏光に対して光学特性に依存性があり、この偏光依存性を利用するためには容器材質が偏光を乱しては都合が悪いので、この観点からは、樹脂の特性として光弾性係数が小さいほうが良く、上記の三種類の樹脂のうちではメタクリル樹脂が最も適していると言える。

【0055】以上、透湿度のあるプラスチックに基づいた乾燥コロイド結晶を得る条件について言及開示したが、コロイド結晶の単結晶化操作終了後、乾燥することなくそのまま素子として供するコロイド結晶の場合は、長期にわたりその状態が保たれることが必要となり、すなわち乾燥を防ぎ、保存のため水分量を保つ必要があることから、プラスチックを使用する場合は、プラスチック

クはガラスと異なり僅かでも透湿性を有しているの、そのことを、むしろ注意しなければならない。その場合、コロイド結晶の長期保存用に適した材質としては、透湿度が小さく（目安としては厚さを1mmとした場合の透湿度が 0.3g/m^2 24Hr、 40°C 、90%RH未満）光学的透明性に優れていることが重要である。具体的には、非晶性ポリオレフィン樹脂が優れている。具体的な商品名としては、三井化学株式会社のAPO（同社の商品名）、同じく同社のアベル（同社の商品名）、さらに、日本ゼオン株式会社のZEONEX（商品名）が挙げられる。これらの非晶性ポリオレフィン系樹脂製品の透湿度は厚さ1mm当たり 0.1g/m^2 24Hr、 40°C 、90%RH以下に達している。また、これらの樹脂はいずれも光弾性係数が小さく、偏光測定が可能な容器を形成できる点でもきわめて都合が良いといえる。

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、簡単に、気泡の混入なく試料の注入ができ、また、注液器による圧力変化操作によるコロイド結晶の単結晶化の後、圧力変動を与えることなく注液器の取り外しができる。これらの効果によって、キャピラリー内には、気泡の影響と余分の圧力変動による乱れのない高品質のコロイド単結晶を作製できる。また、特に特定の透湿度を有す

るプラスチックによる本発明容器によれば、単結晶化したコロイド結晶を作製した状態から、試料全体をほぼ同一乾燥速度で均質にゆっくりと乾燥できるので、結晶性の高い乾燥コロイド結晶が得られる。そして、その工程は極めて単純であり実用性が高い。

【図面の簡単な説明】

【図1】従来の、平板状キャピラリー容器を用いた単結晶化操作の説明図。

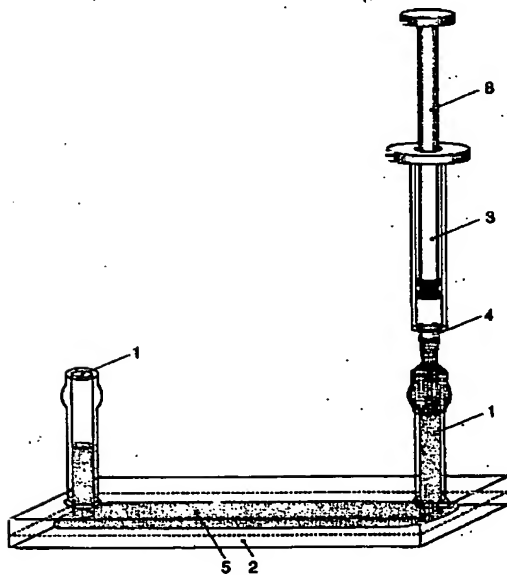
【図2】本発明に係わる容器の構造とその使用法を示す説明図。

【図3】注液器と注液口の関係を示す拡大図。

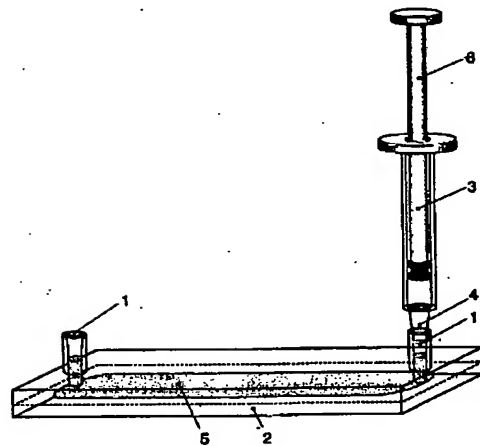
【符号の説明】

- 1・・・注液口
- 2・・・平板状キャピラリー容器（コロイド単結晶作製容器）
- 3・・・注液器
- 4・・・注液器先端部
- 5・・・キャピラリー内部
- 6・・・コロイド溶液
- 7・・・テーパ部
- 8・・・ピストン

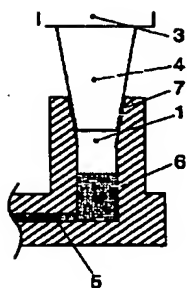
【図1】



【図2】



【図3】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.